

#2 priority doc
D4 AUG 6 2001
531

中華民國經濟部智慧財產局

INTELLECTUAL PROPERTY OFFICE
MINISTRY OF ECONOMIC AFFAIRS
REPUBLIC OF CHINA

JC978 U.S. PTO
10/037581
01/04/02

茲證明所附文件，係本局存檔中原申請案的副本，正確無訛，
其申請資料如下：

This is to certify that annexed is a true copy from the records of this
office of the application as originally filed which is identified hereunder：

申請日：西元 2001 年 06 月 27 日
Application Date

申請案號：090115614
Application No.

申請人：南帝化學工業股份有限公司
Applicant(s)

局長
Director General

陳明邦

發文日期：西元 2001 年 10 月 26 日
Issue Date

發文字號：09011016069
Serial No.

申請日期	
案 號	
類 別	

A4
C4

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書

一、發明名稱	中 文	含至少二種光學活性中心之釔鋁石榴石型螢光粉及其製備與應用
	英 文	YTTRIUM ALUMINIUM GARNET FLUORESCENT POWDER COMPRISING AT LEAST TWO OPTICAL ACTIVE CENTER, ITS PREPARATION AND USES
二、發明人	姓 名	1.劉如熹 2.王健源 3.石景仁 4.吳瑞孔
	國 籍	1.2.3.4.均中華民國
三、申請人	住、居所	1.新竹縣竹東鎮二重里明星路216巷19號 2.高雄縣岡山鎮平安里一鄰平和路35號 3.台北市文山區景東里景華街94之1號2樓 4.高雄縣鳳山市中山西路338巷1~4號
	姓 名 (名稱)	南帝化學工業股份有限公司
三、申請人	國 籍	中華民國
	住、居所 (事務所)	高雄縣 林園鄉工業一路9號
三、申請人	代 表 人 姓 名	鄭高輝

四、中文發明摘要(發明之名稱:

含至少二種光學活性中心之鈮鋁石榴石型螢光粉及其製備與應用)

本發明係關於一種鈮鋁石榴石型螢光粉，其具式 $(Y_{3-x-y}Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ 或 $(Y_3Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ ，其中 $0 < x \leq 0.8$ ， $0.5 < y \leq 2.5$ ，Z 係選自鈰(Ce)以外之稀土金屬元素所組成之群組。本發明亦關於一種粉紅色發光裝置，包括作為發光元件之發光二極體及含鈮鋁石榴石型螢光粉之螢光體，其係以可發出波長為 400 nm 至 450 nm 之紫光或藍光發光二極體作為激發光源之發光元件，配合可受該波段光源激發而發出波長為 575 nm 至 585 nm 之橙黃光至橙光的鈮鋁石榴石型螢光粉，二者之光經混合後產生粉紅色光。本發明另關該鈮鋁石榴石型螢光粉之製備。

英文發明摘要(發明之名稱: YTTRIUM ALUMINIUM GARNET FLUORESCENT)
POWDER COMPRISING AT LEAST TWO OPTICAL
ACTIVE CENTER, ITS PREPARATION AND USES

The subject invention relates to yttrium aluminum garnet fluorescent powder having formula $(Y_{3-x-y}Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ or $(Y_3Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$, in which $0 < x \leq 0.8$ ， $0.5 < y \leq 2.5$, Z being selected from a group consisting of an element of rare earth metal other than Ce. The subject invention also relates to a pink light emitting device, comprising light emitting diodes as a light emitting part and fluorescent body comprising yttrium an aluminum garnet fluorescent powder. The device uses a purple or blue light emitting diode which emits a wavelength of 400 nm to 450 nm as a light source of the light emitting part. The yttrium aluminum garnet fluorescent powder is excited by the wavelength of the light source and emits yellowish orange to orange light having a wavelength of 575 nm to 585 nm. The two above light wavelengths are combined to produce pink light. The subject invention also relates to the preparation of the yttrium aluminum garnet fluorescent powder.

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
I P C 分類：

A6

B6

本案已向：

國(地區) 申請專利，申請日期： 索號： ☐有 ☐無主張優先權

本案在向中華民國申請專利之前未曾向其他任何國家申請專利。

有關微生物已寄存於： 寄存日期： 寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

五、發明說明(1)

發明領域

本發明係關於一種釷鋁石榴石型螢光粉，其係含選自鈰(Ce)以外之稀土金屬元素。本發明亦關於該螢光粉之製備及其於發光裝置之應用，尤其用以提供粉紅色發光裝置。

發明背景

發光二極體(Light-emitting diode, LED)與傳統光源相較具有許多優勢，包括體積小、發光效率佳、壽命長(達十萬小時以上)、無須暖燈時間、操作反應速度極快($\sim 10^{-9}$ 秒)、可靠度高、不易破損、容易配合應用上的需要製成極小或陣列式的元件、無熱輻射與無水銀等有毒物質的污染等優點。此外，若與適當之螢光粉搭配，經色光混合後所製得之白光發光二極體可在較低的操作電壓與電流下(約20 mA)，提供色溫(8000K)可媲美太陽光色且色彩演色性接近高性能之日光燈(三波長型)。

距今最早之LED商品於1968年問世，然而，直至1993年日本日亞公司成功開發出較高效率之GaInN系藍光LED後，方使全彩化之LED產品得以實現。雖然，如黃、橘色等發光二極體業經陸續開發，但目前仍無法製造出粉紅色之發光二極體。有鑑於此，目前亟需開發一種可發粉紅光之發光二極體。

發明概要

本發明之目的在於提供一種釷鋁石榴石型螢光粉，其具式 $(Y_{3-x-y}Ce_xZ_y)Al_3O_{12}$ 或 $(Y_3Ce_xZ_y)Al_3O_{12}$ ，其中 $0 < x \leq 0.8$ ， $0.5 < y \leq 2.5$ ，Z係選自鈰(Ce)以外之稀土金屬元素所組成之

五、發明說明(2)

群組。

本發明之另一目的在於提供一種粉紅色發光裝置，其包括作為發光元件之發光二極體及含釔鋁石榴石型螢光粉之螢光體，其中發光二極體可發出波長為400 nm至450 nm之紫光至藍光，而釔鋁石榴石型螢光粉受發光二極體所發出波段光源激發而發出波長為575 nm至585 nm之橙黃光至橙光，二者之光經混合後產生色彩分佈均勻粉紅色光。

本發明之另一目的在於提供製備本發明螢光粉之方法。

圖示簡單說明

圖1係以實施例3之具釔鋁石榴石型螢光體($Y_{3-x-y}Ce_xGd_y$) Al_5O_{12} ，其 $x=0.05$ ， y 分別為1.2、1.8與2.4之X光粉末繞射光譜。

圖2係以波長450 nm為激發源所測得實施例3具釔鋁石榴石型螢光體之發射光譜。

圖3顯示，以圖2之發射光譜計算得之螢光體色度座標A與波長450 nm之色度座標B為端點所連成之虛線可通過色度座標圖之粉紅區塊。

發明詳細說明

本發明係關於一種釔鋁石榴石型螢光粉，其具式($Y_{3-x-y}Ce_xZ_y$) Al_5O_{12} 或($Y_3Ce_xZ_y$) Al_5O_{12} ，其中 $0 < x \leq 0.8$ ， $0.5 < y \leq 2.5$ ，Z係選自鈰(Ce)以外之稀土金屬元素所組成之群組，其中鈰以外之稀土金屬元素包括釔(Gd)、鐠(Pr)、釹(Nd)、鉕(Pm)、釷(Sm)、鉕(Tb)、鐳(Dy)、釹(Ho)、鉕(Er)、鐳(Tm)、鐳(Yb)及鐳(Lu)。較佳地，於式($Y_{3-x-y}Ce_xZ_y$) Al_5O_{12} 或

五、發明說明 (3)

($Y_3Ce_xZ_y$) Al_5O_{12} 中， $0 < x \leq 0.4$ ， $1.0 < y \leq 2.5$ ，且 Z 為釓。由於本發明螢光粉含至少二種(銻及銻以外之稀土金屬元素)光學活性中心，故可藉由調控其組成或比例而獲取色彩範圍較廣之粉紅光，另可展現高色彩均勻度及高亮度等優良發光特性。特定言之，本發明釓鋁石榴石型螢光粉受發光二極體所發出波長為 400 nm 至 450 nm 之紫光至藍光激發時，可發出波長為 575 nm 至 585 nm 之橙黃色至橙色螢光，其與該用以激發之光線混合，可產生色彩分布均勻之粉紅色光。

本發明之螢光粉可藉由任何習知製備螢光粉之方法製得。已知之螢光粉製法包括固態反應法及化學合成法。其中，固態反應法係將金屬原料依所欲比例混合，經研磨、熱分解(pyrolysis)、煅燒(calcination)、燒結(sintering)及還原(reduction)處理而製得螢光粉。唯由此製得之螢光粉均勻性不佳，粉體顆粒較粗且不均勻。相對地，化學合成法則可提供具所欲純度、均勻度及粒徑大小等特性之螢光粉。因此，就本發明螢光粉之製備，較佳係以化學反應法製得，尤指凝膠法及共沈澱法。

製備本發明螢光粉之凝膠法，包括以下步驟：(1)依所欲螢光粉之金屬組成比例取含所欲金屬之水溶性化合物，予以研磨達到均勻混合，製得金屬粉末混合物；(2)將粉末混合物溶於水中形成水溶液，(3)取適量螯合劑加入水溶液中，使與水溶液中之金屬螯合；(4)調整水溶液之 pH 值至 ≥ 3 ，且使水溶液成為稠狀黏液；(5)熱分解稠狀黏液，得到

五、發明說明 (4)

灰狀物；(6)煨燒灰狀物；及(7)燒結經煨燒後之產物。

步驟(1)中所用化合物可為任何合宜之化合物，其可為金屬鹽類或金屬有機化合物。

步驟(2)中所用水較佳為去離子水，特佳為二次去離子水。

步驟(3)中所用螯合劑係為含可與選用之金屬形成螯合物之有機或無機化合物。可用之螯合劑包括，但不限定於有機酸，例如檸檬酸。螯合劑之用量可視需要選擇。

步驟(4)中可藉由添加鹼而使水溶液之 $\text{pH} \geq 3$ ，較佳使 $\text{pH} \geq 7$ ，更佳使 $\text{pH} \geq 10$ 。該鹼可為有機鹼、無機鹼及其類似物。可使用之有機鹼包括，但不限定於胺類，例如乙二胺。可使用之無機鹼包括，但不限定於氫水。

於步驟(4)中，可於調整溶液之 pH 至所欲值後，使用任何合宜方式促進稠狀黏液之形成，例如藉由加熱方式並以攪拌輔助之，加熱所施用之溫度較佳為不高於 120°C 。

步驟(5)中之熱分解可在空氣中進行，熱分解之溫度視所用金屬種類及可使大部份有機質及部份氮氧化物熱分解之溫度而定，一般為不高於 400°C ，例如 300°C 。於進行步驟(5)之前，可視需要另含一冷卻步驟，以將稠狀黏液冷卻為凝膠物。

步驟(6)中之煨燒及步驟(7)中之燒結係為習知技術，熟習此項技術人士可自行依所用金屬選擇合宜之溫度，時間及加熱/冷卻速率予以實施。例如，於製備 $(\text{Y}_{0.55}\text{Ce}_{0.05}\text{Gd}_{2.4})\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 時，所採之煨燒溫度範圍可為 900°C 至 1200°C ，較常

五、發明說明 (5)

用者為 1000°C ，而燒結溫度範圍可為 1200°C 至 1600°C ，較常用者為 1500°C 。煨燒及燒結可在空氣中進行，加熱/冷卻速率可為 $1^{\circ}\text{C}/\text{分鐘}$ 至 $10^{\circ}\text{C}/\text{分鐘}$ ，例如 $5^{\circ}\text{C}/\text{分鐘}$ 。於步驟 (6) 後可先研磨經煨燒之灰狀物，再進行步驟 (7) 之燒結。

步驟 (7) 之後，可視需要對燒結後之粉末進行還原作用，還原作用係在還原氣氛中以高溫進行。還原氣氛可為任何合適之氣體或混合氣體，混合氣體如氫氣與氮氣之混合氣體，其混合比例可視需要加以選擇。例如，混合氣體可為 H_2/N_2 (5%/95%)。熟習此項技術人士可視需要選用合宜的還原溫度及還原時間以進行還原作用。一般還原溫度為 1300°C 至 1550°C ，較佳為 1500°C ；所採還原時間可為 6 小時至 18 小時，例如 12 小時。

製備本發明螢光粉之共沈澱法，包括以下步驟：(1) 依所欲螢光粉之金屬組成比例取舍所欲金屬之水溶性化合物，予以研磨達到均勻混合，製得金屬粉末混合物；(2) 將粉末混合物溶於水中形成水溶液，(3) 調整水溶液之 pH 值至 ≥ 3 ，且使其形成膠狀物；(4) 熱分解膠狀物，得到灰狀物；(5) 煨燒灰狀物；及 (6) 燒結經煨燒後之產物。

步驟 (1) 中所用化合物可為任何合宜之化合物，其可為金屬鹽類或金屬有機化合物。

步驟 (2) 中所用水較佳為去離子水，特佳為二次去離子水。

步驟 (3) 中可藉由添加鹼使水溶液 $\text{pH} \geq 3$ ，較佳使 $\text{pH} \geq 7$ ，更佳使 $\text{pH} \geq 10$ 。鹼可為有機鹼，無機鹼及其類似物。

五、發明說明(6)

可使用之有機鹼包括，但不限定於胺類，例如乙二胺。可使用之無機鹼包括，但不限定於氨水。

於步驟(3)中，在調整溶液至所欲pH值後，可藉由如攪拌等方式，以促進膠狀物之形成。另可視需要藉由如過濾(例如抽氣過濾)之方法，取得該膠狀物。

步驟(4)之熱分解可在空氣中進行，熱分解溫度視所用金屬種類及可使大部份之有機質及部份氮氧化物熱分解之溫度而定。熱分解溫度一般為不高於400°C，例如300°C。

步驟(5)後可先研磨經煅燒之灰狀物，再進行步驟(6)之燒結。

步驟(5)中之煅燒及步驟(5)中之燒結係為習知技術，熟習此項技術人士可自行依所用金屬選擇合宜之溫度，時間及加熱/冷卻速率予以實施。例如，於製備 $(Y_{0.55}Ce_{0.05}Gd_{2.4})Al_5O_{12}$ 時，所採之煅燒溫度範圍可為900°C至1200°C，較常用者為1000°C，而燒結溫度範圍可為1200°C至1600°C，較常用者為1500°C。煅燒及燒結可在空氣中進行，加熱/冷卻速率可為1°C/分鐘至10°C/分鐘，例如5°C/分鐘。

步驟(6)之後，可視需要使燒結後之粉末進行還原作用，還原作用係在還原氣氛中以高溫進行。還原氣氛可為任何合適之氣體或混合氣體，混合氣體如氫氣與氮氣之混合氣體，其混合比例可視需要加以選擇。例如，混合氣體可為 H_2/N_2 (5%/95%)。熟習此項技術人士可視需要選用合宜的還原溫度及還原時間以進行還原作用。一般還原溫度為1300°C至1550°C，較佳為1500°C；一般還原時間為6小時

五、發明說明(7)

至18小時，較佳為12小時。

藉由調整步驟(1)之金屬粉末混合物組成，可使用上述凝膠法及共沈澱法，以製備本發明所欲之任何螢光粉，所製得產物，相較於固態反應法所製者，具粉體顆粒較細且均勻等優點。

本發明亦關於一種粉紅色發光裝置，其包括作為發光元件之紫外線發光二極體及含釔鋁石榴石型螢光粉之螢光體，其中，該釔鋁石榴石型螢光粉具式 $(Y_{3-x-y}Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ 或 $(Y_3Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ ，且 $0 < x \leq 0.8$ ， $0.5 < y \leq 2.5$ ，Z係至少一種選自銻(Ce)以外之稀土金屬元素所組成之群組。銻以外之稀土金屬元素包括釔(Gd)、鐑(Pr)、釹(Nd)、鉕(Pm)、釷(Sm)、銩(Tb)、鐳(Dy)、釹(Ho)、鉕(Er)、銩(Tm)、鐳(Yb)及鐳(Lu)。較佳地，所採式 $(Y_{3-x-y}Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ 或 $(Y_3Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ 釔鋁石榴石型螢光粉中， $0 < x \leq 0.4$ ， $1.0 < y \leq 2.5$ ，且Z為釔。

本發明粉紅色發光裝置係利用可發出波長為400 nm至450 nm之紫光至藍光發光二極體作為激發光源，配合可受該波段光源激發而發出波長為575 nm至585 nm之橙黃光至橙光的釔鋁石榴石型螢光粉，二者之光經混合後產生粉紅色光。

以同時添加銻與釔於釔鋁石榴石型螢光粉所製成之螢光體為例，經400 nm至450 nm範圍之紫光至藍光發光二極體光源照射下，可發出波長為575 nm至585 nm之橙黃光至橙光，該二種經混合後不僅可呈現色彩分布均勻之粉紅色，

五、發明說明(8)

且其亮度亦較單獨添加鎔之情形高。螢光材料之光學特性係利用光激發光光譜儀(Photoluminescence spectrometer)對發光體進行激發光譜掃描，基於光譜所示之結果以決定掃描發射光譜時之激發波長。本發明之同時含至少二種光學活化中心所製得之釔鋁石榴石型螢光體極易受波長為400 nm至450 nm之紫光至藍光所激發，同時可發出的波長範圍為575 nm至585 nm之橙黃光至橙光。而當肉眼直視螢光體時則可感受亮度相當高之粉紅光，此原理乃根據光學上當二種不同波長之光線同時刺激視神經時，可感受出不同於個別原光波之新色彩。該色彩之色度座標，以(x, y)表示，可在色度座標圖(CIE Chromaticity diagram)中以原二光波之二個色度座標為端點所連成之線段上，依強度之比重關係計算得之。是以，得以習知技術，將本發明之螢光粉以適當材料支持或固定之，成為螢光體。配合可發出400 nm至450 nm之紫光至藍光之發光二極體作為激發光源，再施以適當之電流即可獲得一發光特性佳之粉紅色發光二極體。

請參考圖1，其係以實施例3之具釔鋁石榴石型螢光粉 $(Y_{3-x-y}Ce_xGd_y)Al_5O_{12}$ ，其中 $x=0.05$ ， y 分別為1.2、1.8與2.4之X光繞射光譜。如圖1所示，經與 $Y_3Al_5O_{12}$ 釔鋁石榴石結構之X光繞射標準圖譜比對，可發現所合成之產物均為純相。由於螢光粉之成分與其發光效率有相當密切之關係，因此，利用本發明方法所製得之螢光粉確實可令其具純相之要件。請參考圖2，其係以波長450 nm為激發源所測得上述之 $(Y_{3-x-y}Ce_xGd_y)Al_5O_{12}$ 螢光粉發射光譜。如圖2所示，當螢

五、發明說明(9)

光粉中取代釷之釷的量愈多，其所發之螢光波長分布愈往波長較長之方向移動，即一般所稱之紅位移。圖3所示為將發射光譜之數據以1931年由國際照明委員會(Commission Internationale de l'Eclairage, CIE)所制訂的色度座標圖(Chromaticity diagram)之公式換算成此螢光粉所代表之色度座標。將螢光粉($Y_{3-x-y}Ce_xGd_y$) Al_5O_{12} ($x = 0.05$, $y = 1.2$ 、 1.8 與 2.4)之色度座標與波長為450 nm之色度座標(0.1738, 0.0049)分別以A、B、C與D標記之，並以虛線分別畫出A、B、C與D點間之連線。由圖3發現，此連線可通過色度座標圖中之粉紅區塊，亦即，依色光混合的原理，當人體之視神經同時受波長為450 nm之光波與橙黃光或橙光(A、B或C點)之光波刺激時，可以產生粉紅色的視覺。值得注意的是，欲得任何一光源其色度座標落於粉紅區塊之左半部時，若利用習用單一發光中心之螢光粉，如($Y_{3-x}Eu_x$) Al_5O_{12} ，是無法與紫光或藍光發光二極體搭配而得，故調整螢光粉化學組成之重要性是相當明顯的。是故，將本發明之方法所得之螢光粉與適當之材料依適當之比例混合，再配合可發出適當波長之紫光或藍光發光二極體作為激發光源，經適當封裝後，施以適當之電流即可獲得一發光特性佳之粉紅色發光二極體。

以下列實施例進一步說明本發明，熟習此項技藝者可由之更清楚知悉本發明之實施，唯，該等實施例不應被視為對本發明範圍之限制。

實施例1(固態反應法)

五、發明說明 (10)

依 $Y : Ce : Gd : Al = 0.55 : 0.05 : 2.4 : 5$ 之化學計量比，分別取 0.4021 克硝酸釔 $[Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O]$ 、3.5748 克硝酸鋁 $[Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O]$ 、0.0418 克硝酸銻 $[Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O]$ 與 1.9824 克硝酸釷 $[Gd(NO_3)_3 \cdot 5H_2O]$ ，將秤取之原料以研磨方式均勻混合。

將混合物置入坩堝中，並於空氣中以 $5^\circ C/min$ 之升溫速率加熱至 $1000^\circ C$ 進行煅燒。24 小時後以 $5^\circ C/min$ 之降溫速率冷卻至室溫。

研磨煅燒後之粉末，將之再置於坩堝中在空氣中以 $1500^\circ C$ 燒結 24 小時，燒結步驟之升降溫速率為 $5^\circ C/min$ 。

研磨燒結後之粉末，可視需要再將之置於 $H_2/N_2(5\%/95\%)$ 之還原氣氛中以 $1500^\circ C$ 進行還原 12 小時。此乃將樣品中之 Ce^{4+} 離子還原成 Ce^{3+} ，藉以提高其發光亮度。最後，冷卻至室溫後取出所製得之 $(Y_{0.55}Ce_{0.05}Gd_{2.4})Al_5O_{12}$ 螢光粉。

實施例 2 (凝膠法)

依 $Y : Ce : Gd : Al = 0.55 : 0.05 : 2.4 : 5$ 之化學計量比，分別取 0.4021 克硝酸釔 $[Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O]$ 、3.5748 克硝酸鋁 $[Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O]$ 、0.0418 克硝酸銻 $[Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O]$ 與 1.9824 克硝酸釷 $[Gd(NO_3)_3 \cdot 5H_2O]$ ，將之置入二次去離子水中使其溶解形成水溶液。

於上述水溶液中加入與金屬離子等莫耳數劑量之檸檬酸。隨後加入鹼，例如氨水或乙二胺等，以調整水溶液至 pH 為 10.5。於 $100^\circ C \sim 120^\circ C$ 加熱該水溶液，使其形成稠狀黏液。冷卻該稠狀黏液得一凝膠物，於空氣中以 $300^\circ C$ 熱

五、發明說明 (11)

分解該凝膠物中之大部分有機質及部分氮氧化物，得到黑褐色灰狀物。

將灰狀物置入坩堝中，並於空氣中以 $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之升溫速率加熱至 1000°C 進行煅燒。於 24 小時後以 $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之降溫速率冷卻至室溫。研磨煅燒後之粉末，將之置於坩堝中，且在空氣中以 1500°C 燒結 24 小時，燒結步驟之升降溫速率為 $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 。

研磨燒結後之粉末，可視需要置於 $\text{H}_2/\text{N}_2(5\%/95\%)$ 之還原氣氛中以 1500°C 進行還原 12 小時，以將樣品中之 Ce^{4+} 離子還原成 Ce^{3+} ，提高其發光亮度。最後，冷卻至室溫後取出所製得之 $(\text{Y}_{0.55}\text{Ce}_{0.05}\text{Gd}_{2.4})\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 螢光粉。

實施例 3 (共沈澱法)：

依 $\text{Y} : \text{Ce} : \text{Gd} : \text{Al} = 0.55 : 0.05 : 2.4 : 5$ 之化學計量比，分別取 0.4021 克硝酸釔 $[\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}]$ 、3.5748 克硝酸鋁 $[\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}]$ 、0.0418 克硝酸銻 $[\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}]$ 與 1.9824 克硝酸釷 $[\text{Gd}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}]$ ，將之置入二次去離子水中使其溶解形成水溶液。

於上述水溶液加入鹼，例如氨水或乙二胺等，以調整水溶液至 pH 為 10.5。攪拌所形成之膠體溶液，然後以抽氣過濾法取得白色膠狀物。將白色膠狀物於空氣中以 300°C 熱分解該膠狀物中之大部分有機質及部分氮氧化物，得到黑褐色灰狀物。

將灰狀物置入坩堝中，並於空氣中以 $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之升溫速率加熱至 1000°C 進行煅燒。24 小時後以 $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之降溫速率

五、發明說明 (12)

冷卻至室溫。研磨煅燒後之粉末，將之再置於坩堝中，且在空氣中以 1500°C 燒結 24 小時，燒結步驟之升降溫速率仍為 $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 。

研磨燒結後之粉末，視需要再將之置於 $\text{H}_2/\text{N}_2(5\%/95\%)$ 之還原氣氛中以 1500°C 進行還原 12 小時，以將樣品中之 Ce^{4+} 離子還原成 Ce^{3+} ，提高其發光亮度。

最後，冷卻至室溫後取出所製得之 $(\text{Y}_{0.55}\text{Ce}_{0.05}\text{Gd}_{2.4})\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 螢光體，並以研鉢研磨之。將螢光體以 X 光粉末繞射法鑑定所合成產物之晶體結構是否為純相，再以光激發光光譜儀量測其發光特性。

重覆上述步驟，但改變硝酸釔與硝酸釷之用量，使 Y : Ce : Gd : Al 之化學計量比為 1.75 : 0.05 : 1.2 : 5 及 1.15 : 0.05 : 1.8 : 5，以分別製得 $(\text{Y}_{1.75}\text{Ce}_{0.05}\text{Gd}_{1.2})\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 與 $(\text{Y}_{1.15}\text{Ce}_{0.05}\text{Gd}_{1.8})\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 螢光粉，並量測其發光特性。

本申請案所述之實施例僅為本發明之具體實施例，唯本發明之要旨並不侷限於此。任何以同時添加二種(含)以上光學活性中心於釔鋁石榴石型主體晶格中所製成之螢光體，致可展現高色彩均勻度、高亮度等優良發光特性為目的所實施之變化或修飾皆被含蓋在本案之專利範圍內。

六、申請專利範圍

1. 一種釔鋁石榴石型螢光粉，其具式 $(Y_{3-x-y}Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ 或 $(Y_3Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ ，其中 $0 < x \leq 0.8$ ， $0.5 < y \leq 2.5$ ，Z 係選自鈾 (Ce) 以外之稀土金屬元素所組成之群組。
2. 根據申請專利範圍第 1 項之釔鋁石榴石型螢光粉，其中鈾以外之稀土金屬元素包括釷 (Gd)、鐳 (Pr)、釹 (Nd)、鉕 (Pm)、釷 (Sm)、銩 (Tb)、鐿 (Dy)、釹 (Ho)、鉕 (Er)、銩 (Tm)、鐿 (Yb) 及 鐳 (Lu)。
3. 根據申請專利範圍第 1 項之釔鋁石榴石型螢光粉，其中 Z 為釷。
4. 根據申請專利範圍第 1 項之釔鋁石榴石型螢光粉，其中螢光粉受波長為 400 nm 至 450 nm 範圍之紫光至藍光激發可發出波長為 575 nm 至 585 nm 之橙黃光至橙光。
5. 根據申請專利範圍第 1 項之釔鋁石榴石型螢光粉，其係用於製作粉紅色發光二極體。
6. 一種製備釔鋁石榴石型螢光粉之方法，該螢光粉係具式 $(Y_{3-x-y}Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ 或 $(Y_3Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ ，其中 $0 < x \leq 0.8$ ， $0.5 < y \leq 2.5$ ，Z 係選自鈾 (Ce) 以外之稀土金屬元素所組成之群組，該製法包括以下步驟：(1) 取含所欲金屬之水溶性化合物，依所欲螢光粉之金屬組成比例予以研磨達到均勻混合，製得金屬粉末混合物；(2) 將粉末混合物溶於水中形成水溶液，(3) 取適量螯合劑加入水溶液中，使與水溶液中之金屬螯合；(4) 調整水溶液之 pH 值至 ≥ 3 ，且使水溶液成為稠狀黏液；(5) 熱分解稠狀黏

六、申請專利範圍

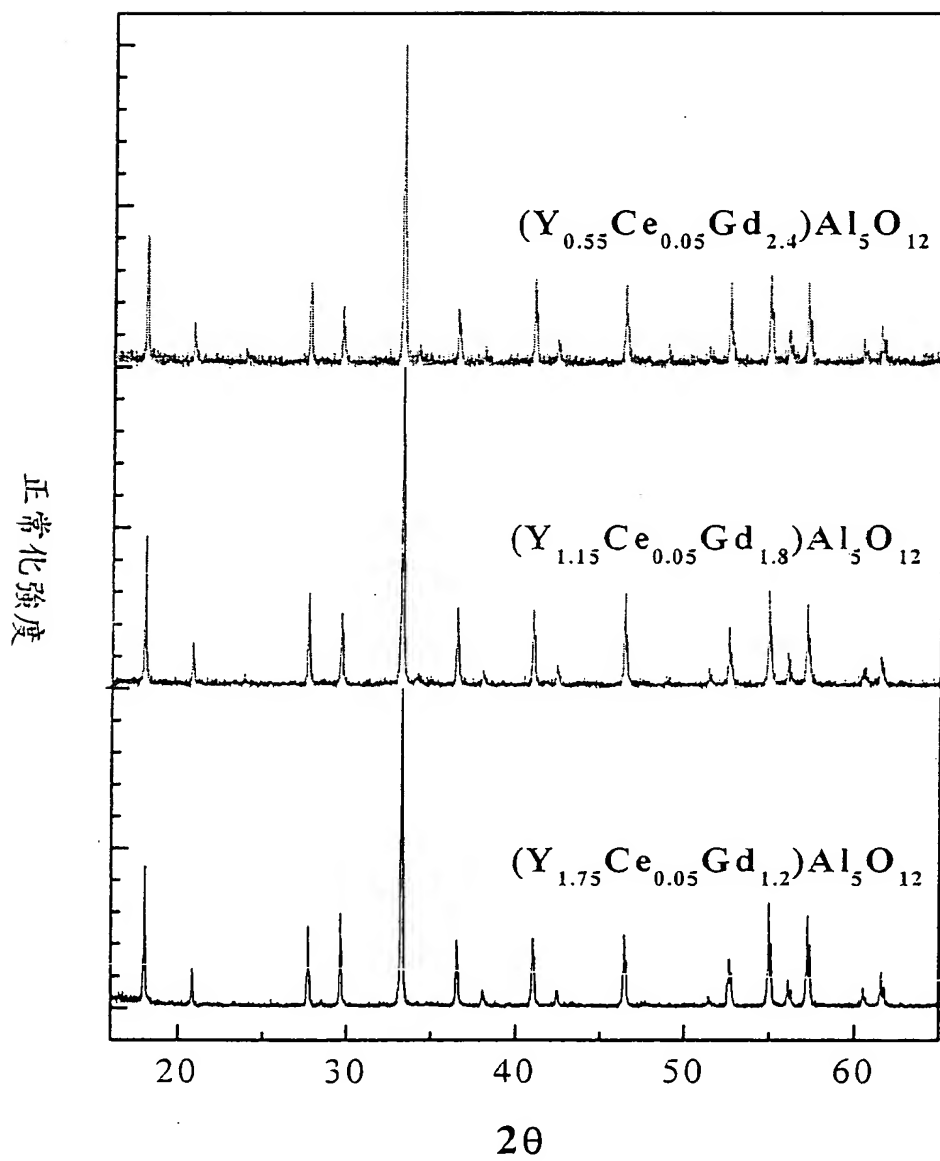
- 液，得到灰狀物；(6)煅燒灰狀物；及(7)燒結經煅燒後之產物。
7. 根據申請專利範圍第6項之方法，其中步驟(1)之化合物係為其金屬鹽類或金屬有機化合物。
8. 根據申請專利範圍第6項之方法，其中步驟(2)所用水係為去離子水。
9. 根據申請專利範圍第6項之方法，其中步驟(3)中所用螯合劑係為含可與選用之金屬離子形成螯合物之有機或無機化合物。
10. 根據申請專利範圍第6項之方法，其中在步驟(4)係使用有機鹼或無機鹼調整pH。
11. 根據申請專利範圍第6項之方法，其中在步驟(7)之後進一步還原燒結後之粉末。
12. 一種製備釷鋁石榴石型螢光粉之方法，該螢光粉係具式 $(Y_{3-x-y}Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ 或 $(Y_3Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ ，其中 $0 < x \leq 0.8$ ， $0.5 < y \leq 2.5$ ，Z係選自鈰(Ce)以外之稀土金屬元素所組成之群組，該製法包括以下步驟：(1)取含所欲金屬之水溶性化合物，依所欲螢光粉之金屬組成比例予以研磨達到均勻混合，製得金屬粉末混合物；(2)將粉末混合物溶於水中形成水溶液，(3)調整水溶液之pH值至 ≥ 3 ，且使水溶液形成膠狀物；(4)熱分解膠狀物熱，得到灰狀物；(5)煅燒灰狀物；及(6)燒結經煅燒後之產物。
13. 根據申請專利範圍第12項之方法，其中步驟(1)之化合

六、申請專利範圍

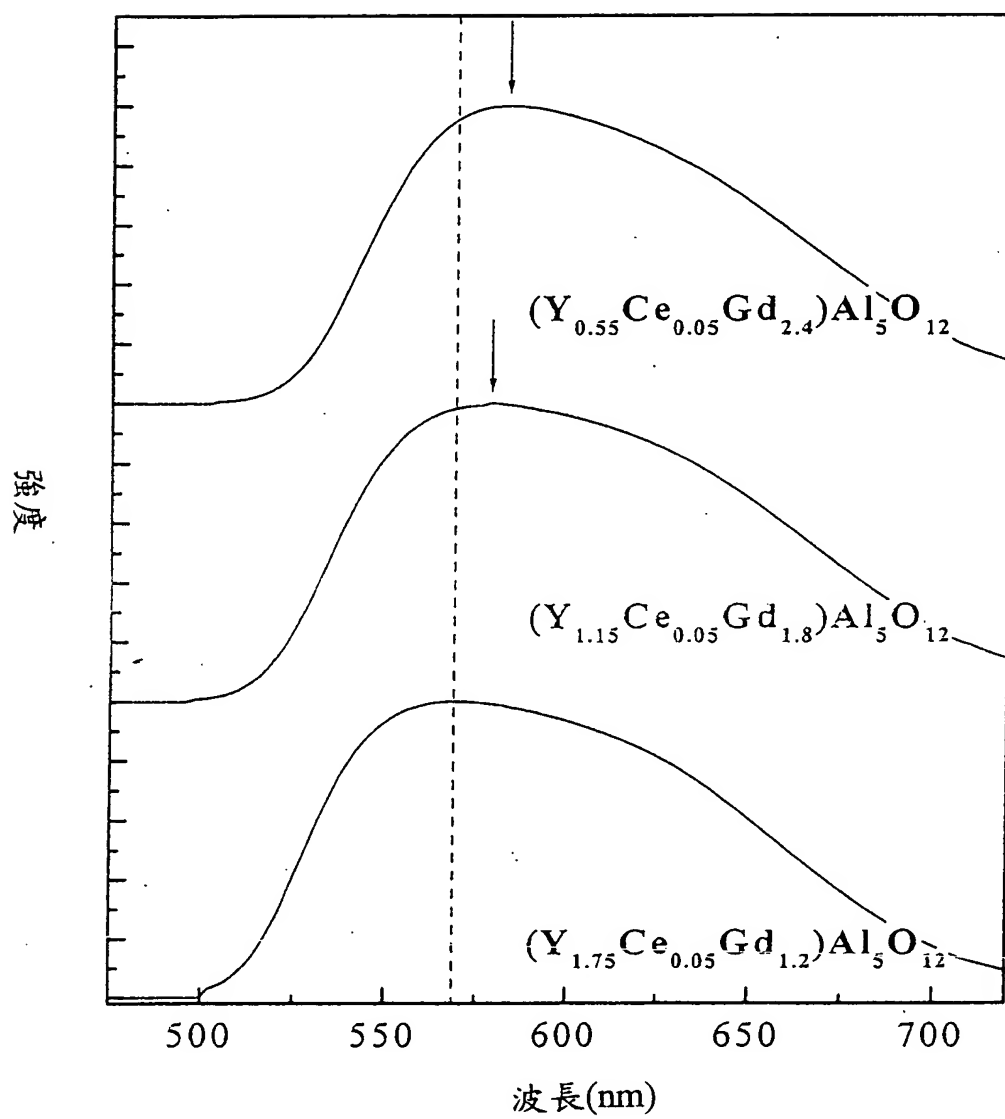
物係金屬鹽類或金屬有機化合物。

14. 根據申請專利範圍第12項之方法，其中步驟(2)所用水係為去離子水。
15. 根據申請專利範圍第12項之方法，其中在步驟(3)係使用有機鹼或無機鹼調整pH。
16. 根據申請專利範圍第12項之方法，其中在步驟(6)之後進一步還原燒結後之粉末。
17. 一種高亮度粉紅色發光裝置，其包括作為發光元件之紫外線之發光二極體及含釷鋁石榴石型螢光粉之螢光體，其中該釷鋁石榴石型螢光粉係具式 $(Y_{3-x-y}Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ 或 $(Y_3Ce_xZ_y)Al_5O_{12}$ ，其中 $0 < x \leq 0.8$ ， $0.5 < y \leq 2.5$ ，Z係至少一種選自鈰(Ce)以外之稀土金屬元素所組成之群組。
18. 根據申請專利範圍第17項之粉紅色發光裝置，其中鈰以外之稀土金屬元素包括釷(Gd)、鐠(Pr)、釹(Nd)、鉕(Pm)、釷(Sm)、鉕(Tb)、鐳(Dy)、釹(Ho)、鉕(Er)、鉕(Tm)、鐳(Yb)及鐳(Lu)。
19. 根據申請專利範圍第17項之粉紅色發光裝置，其中Z為釷。
20. 根據申請專利範圍第17項之粉紅色發光裝置，其中發光元件可發出波長為400 nm至450 nm範圍之紫光至藍光。
21. 根據申請專利範圍第17項之粉紅色發光裝置，其中螢光粉受發光元件所發出之紫光至藍光激發而發出波長為575 nm至585 nm之橙黃光至橙光。

圖一



圖二



圖三

